



特 許 願

昭和57年1月7日

特許庁長官 斉藤 英 雄 殿

1. 発明の名称 電気ルミネセンス素子  
2. 特許請求の範囲に記載された発明の要旨

3. 発明者

〒466-0001 名古屋市瑞穂区瑞穂ヶ丘町3の401

4. 特許出人 井 重 信 (独り) 名

郵便番号

467-111

名古屋市瑞穂区瑞穂ヶ丘町14番18号

(54) 日本特許陶器株式会社

代表取締役 小川 修 氏

電話 501-7111

電報 501-6345

5. 添付書類の目録

- (1) 明細書 1 通  
(2) 図 面 1 通  
(3) 願書原本 1 通  
(4) ( ) 通



⑤ 日本国特許庁

## 公開特許公報

① 特開昭 50-102283

③ 公開日 昭50.(1975) 8.13

② 特願昭 49-6199

⑦ 出願日 昭49.(1974) 1. 9

審査請求 未請求 (全4頁)

庁内整理番号

7437 54

⑥ 日本分類

995K0

⑧ Int. Cl?

H05B 33/02

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

電気ルミネセンス素子

## 2. 特許請求の範囲

(1) 上面に電極面を形成したセラミツク基板の上に、ナタン酸バリウム等誘電率の高いセラミツク材料よりなる誘電体層を設け、更に該誘電体層上に発光体層、透明電極層及び防護保護層を順次被着してなる電気ルミネセンス素子。

(2) 上面に複数の電極面を形成し、かつ下面に前記複数の電極面とスルーホールを介して選択的に接続する回路要素を配したセラミツク基板上に、ナタン酸バリウム等誘電率の高いセラミツク材料よりなる誘電体層を設け、更に該誘電体層上に発光体層、透明電極層及び防護保護層を順次被着してなる電気ルミネセンス素子。

## 3. 発明の詳述を説明

本発明は電気ルミネセンス素子（以下素子

子という）に関するもので、従来は第1図に示すように金属基板1上に中間層2を介して誘電体層3を被付け、その上に発光体層4、透明電極層5及び防護保護層6を順次被着した素子3が公知である。この種のものは金属基板1と誘電体層3の膨張係数差による割れを防止すると共に基板1から発光体層4の毒性を阻害する不純物（例えば鉄イオン等）の侵入を防止するため金属基板1と誘電体層3の間に中間層2（例えばナタン系白色粉）を介在するため、該中間層2で電位降下が著しくなり、また上記誘電体層3は普通ナタン酸バリウム等の粉末にバインディングとしてガラスを多量に加える必要があるため該層3の誘電率が低く、そのため発光体層4に加わる電界が著しく低下し高輝度で発光させることができなかった。

本発明は上記問題を解決したもので、以下本発明の基本的態様を示した第2図について説明する。

図中1/1はセラミツクからなる基板で、上面

に白金、パラジウム等貴金属電極材料にて印刷、蒸着、メッキ等によつて所定形状の電極面/2を形成してなる。/2はセラミック基板/1の電極面/1上に設けられタタン酸バリウム等誘電率の高いセラミックからなる誘電体層、/3は誘電体層上に設けられ $Ca$ 、 $Al$ 等で活性化された酸化亜鉛からなる発光体層、/4は誘光体層/3上に設けられ酸化錫等からなる透明電極層、/5は更に該透明電極層/4上に設けられ合成樹脂、ガラス等透明性絶縁性材料からなる防護保護層である。尚/7は上記セラミック基板/1の上面に形成した電極面/2と透明電極層/4の間に電界を印加し発光体層/3を電極面/2と同形状に発光せしめる交流電源である。

いま、タタン酸バリウム70重量%、ジルコン酸鉛30重量%、錫酸鉛5重量%からなる誘電率1000-10000のセラミック原料混合物に可塑、粘結剤としてブタロール系樹脂を1重量%含有してよく混練し、ローリング法によつて厚み

特開昭50-102283の

30%と400%の厚さに圧延した後プレス加工によつてそれぞれ長30mm×横40mmの矩形寸法に裁断し、厚い方の生シートを基板用K、薄い方の生シートを誘電体層の形成用として準備する。

次に上記基板用生シート/1の上面にパラジウム70重量%と四酸化珪素10重量%からなるペースト状インクを長30mm×横30mm寸法にスクリーン印刷して電極面/2を形成し、この上面に他の誘電体層形成用生シート/3を覆着した後、温度100℃、圧力25kgの条件で一体に熱圧着したものを実大気中で一旦230℃の低誘電率で生シート中の可塑、粘結剤を揮散し、続いて1200-1400℃で3時間焼成して基板/1と誘電体層/3を同時に焼結した後、前記誘電体層/3上に $Ca$ と $Al$ で活性化した $ZnO$ 30重量%を低融点鉛ガラスフリット30重量%中に分散させた混合物を35μm厚さに塗布し300℃、15分間で焼付けて発光体層/4を形成し、更にその上に酸化錫からなる透明電極層/5及び

低融点鉛ガラスからなる透明性防護保護層/6をそれぞれ0.1-2μm及び0.5-0.8μmの厚さに塗布し400℃、15分間で焼付け形成した第2図の $\alpha$ 型素子について検査を測定した結果、100V、60Hzで100μm以上を示し、耐電圧試験においても500Vの印加電圧に充分耐え得た。またセラミック基板/1と誘電体層/3は完全に密着し剥離部分は見られなかつた。更にまた別の実験においてセラミック基板/1は高誘電率を要求せず単に機械的強度と電気絶縁性を保有すればよいので、上記誘電体層/3と同一の組成組成物に代えて純度90%以上の高アルミナ組成組成物のグリーンシートを基板として使用した場合でも上記実施例と各々同様の成果を得た。

尚、上記実施例はセラミック粉末に樹脂を配合した泥漿物をシート化した生の厚板に同じく泥漿物をシート化した生の薄板を重ね圧延し一旦板状により樹脂抜きを焼結することによつて基板/1と誘電体層/3を同時に形成した状態を示したが、基板上に設ける誘電体層は前述の

如くシート化した生の厚板による必要はなく、低融点鉛物を基板に塗布することによつても可能である。これらの方法によれば製作工費が著しく簡略化され生産性を高め得る利点があるが、別の手段として予じめ焼結した基板と同じく低融点化した誘電体層とせる厚板を重ね両者を一体に結合することもできる。

以上の通り上面に電極面を形成したセラミックからなる基板の上に、タタン酸バリウム等誘電率の高いセラミックからなる誘電体層を設け、更に誘電体層上に発光体層、透明電極層及び防護保護層を順次積層してなる本発明の素子は、基板として従来の金属と異なりセラミックを使用したから、両者の膨張係数差による割れ及び発光体層を劣化する不純物の侵入を生じる傾向は全くなく、従つて従来の $\alpha$ 型素子の如く金属基板と誘電体層の間に介在する中間層を省略できるため該中間層による電位降下を生ぜず、更に誘電体層は高誘電率セラミック材料に低誘電率によつて弾散する樹脂を配合したものであるか

ら従来の如く耐電圧を低下するガスを多量に含有したものに対し高い耐電圧を呈し、上記実施例に示したように耐電、耐電圧を著しく向上する効果がある。

次に第1図は本発明に従つて形成した数字表示素子を示し、上面に複数の線状電極22a~22gによつて「日」の字状に配列した数字表示部分22を形成し、かつ下面に複数の導線を直接形成するか、あるいは図示の如く上面に複数の導線22a~22gを形成した他のセラミツクからなる図路板21を一体に貼合すると共に上面の線状電極22a~22gと下面の導線22a~22gを各々選択的に接続する導電層21a~21gを施したスルーホール21a~21gを穿設したセラミツク基板を使用する以外は、上記第2図の実施例と同様に構成してなり上記セラミツク図路板の複数導線22a~22gのいずれか/ヶ所以上と透明電極層2との間に電気接点を印加することによつて前記導線と導通する電極に電圧を介して発する発光体層2を「0~9」の数字に部分的に

特開昭50-102283Q) 発光表示するものである。尚この第1図の実施例は7個の「日」の字文字を示したが、実際に用いては複数個の「日」の字文字を形成することが望ましい。

更に本発明に従えば上記第1図の形態に限らずセラミツク基板の上面に又は線状の電極面を多数形成し、その基板の下面には複数の導線を含みこれらをスルーホールによつて所定図路に構成したセラミツク多層図路板を配設すると共に上記電極面と多層図路板の導線を同じくスルーホールによつて選択的に導通することによつて上記数字表示はもちろんのこと、文字、記号、図形等各種の形状を表現することもできる。

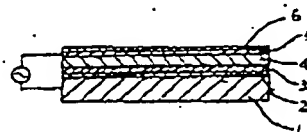
#### 4 図面の簡単な説明

第1図は従来の素子を示す断面図、第2図は本発明の素子を示す断面図、第3図は本発明の他の実施例に係る素子を示し、Aは側面図、BはA図I-I線に沿う断面正面図、Cは裏面図である。尚第1、2図中同一符号は同一部品を示す。

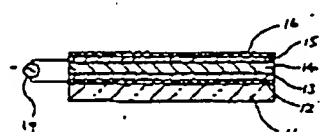
1/1...セラミツク基板、1/2...電極面、1/3...耐電体層、1/4...発光体層、1/5...透明電極層、1/6...耐電保護層、1/7...交差電極、2/1...セラミツク図路板、2/a~2/g...スルーホール、22...「日」の字状数字表示部分、22a~22g...複数の線状電極面、22a~22g...複数の導線

特許出願人 日本特殊陶業株式会社  
代表者 小川 修

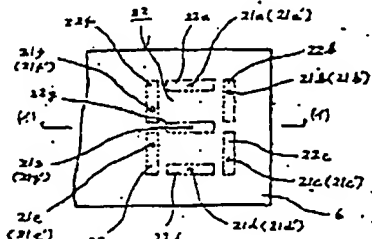
第1図



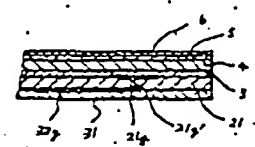
第2図



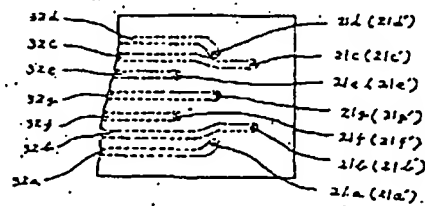
第3図A



第3図B



第3図C



特開 4150-102283(4)

▲ 前記以外の発明者

ア 知 果 江 南 市 香 木 公 司 香 港  
 高 見 昭 雄

ア 知 果 日 井 南 陸 奥 本 町 公 司 香 港  
 八 木 芳 明

**#1. Unexamined Patent Publication Sho50-102283**

1. Name of Invention:	Electro-luminescence Device
2. Inventor:	Fujii, Shigenobu and 2 others
3. Applicant:	Nippon Tokushu Togyo
21. Application Number:	49-6199
22. Application Date	January 9, 1974
43. Date of Publication:	August 13, 1975

**Details****1. Title of Invention**

Electro-Luminescence Device

**2. Area of Claims [skip till later]**

- (1) Electro-luminescence device where electrode surface is formed on ceramic substrate. Ceramic layer of high dielectric material such as barium titanate is formed on substrate. Luminescence layer, transparent electrode layer and moisture protective layer are placed, in this order, on this dielectric layer.
- (2) Electro-luminescence device where, more than one electrode surfaces are formed on top surface of ceramic substrate, and circuitry elements which are selectively connected to above mentioned electrode surfaces, via through holes on bottom surface of ceramic substrate. On this ceramic substrate, high dielectric layer of such material as barium titanate is formed. Luminescence layer, transparent electrode layer and moisture protective layer are formed one after another dielectric layer.

**3. Detail Explanation of Invention**

This invention relates to electro-luminescence device ('EL device', hereafter). In the past, as shown in Fig. 1, EL device, where dielectric layer 3 is burnt on surface of metal substrate 1 via intermediate layer 2, and luminescence layer 4, transparent electrode layer 5 and moisture protective layer 6 are placed, has been known.. This type of EL device has intermediate layer 2 (for example, white titanium series glazing material) between metal substrate 1 and dielectric layer 3. The purpose of this intermediate layer is to prevent de-lamination due to the difference in thermal expansion coefficients, and intrusion of impurities (for example cation of iron) which may degrade the characteristics of luminescence layer. Voltage drop at intermediate layer 2 is large. The dielectric constant of dielectric layer 3 is low because of large amount of glass

which must be added as binder to powder such as barium titanate. Consequently, the electric field charged onto luminescence layer 4 is lowered and it was not possible to obtain high brightness.

This invention solves problems described above. Fig. 2, which shows fundamental structure of this invention, will be explained:

In the figure, 11 is ceramic substrate. On substrate surface, electrode surface 12 is formed in required shape, with precious metal such as platinum or palladium, by printing, by vapour deposition method or by plating. 13 is dielectric layer of high dielectric ceramic, such as barium titanate, which is formed on electrode surface 12 on ceramic substrate 11. 14 is luminescence layer formed on dielectric layer and is made of zinc sulfate activated by such substance as Cu or Al. 15 is transparent electrode layer which is formed on luminescence layer 14, and is made of such material as oxide of tin. 16 is moisture protective layer formed on transparent electrode layer 15 and is made of such transparent insulating material as plastic or glass. 17 is alternate current power source to charge electric field between electrode surface 12 on ceramic substrate 11 and transparent electrode layer 13 in order for luminescence layer 14 to illuminate in the same shape as that of electrode surface 12.

First, 8 wt % butylal series resin is added, as plasticizer and binder, to ceramic raw material mixture, composed of 90 wt % barium titanate, 5 wt % lead zirconate and 5 wt % 'Pb salt of Sn', and the mixture is kneaded well. The raw ceramic material mixture has dielectric constant of  $1000 \sim 10,000$ . It was rolled out under pressure into sheet form of 50  $\mu$  thick and 400  $\mu$  thick. Then, they were both cut to 50 mm x 60 mm rectangle sheets. Thicker green sheet is for substrate and thinner green sheet is for dielectric layer.

Then, on substrate green sheet 11, rectangle shape of 20 mm x 30 mm was screen printed with ink of paste form, composed of 90 wt % palladium and 10 wt % borosilicate glass, to make electrode surface 12. Other dielectric green sheet 13 was placed on electrode surface 12. Plasticizer and binder material in green sheet, which was heat pressed under pressure of 3.5 MPa, was expelled by pre-heating green sheet at 230 °C in air. Then, it was sintered for 3 hours at 1200 ~ 1400 °C to make sintered substrate 11 and dielectric layer 13 at the same time. Then, dispersed mixture of 50 wt % ZnS, activated with Cu and Cl, in 50 wt % glass frit, was painted on dielectric layer 13 with thickness of 25  $\mu$ . It was burnt on at 500 °C for 15 minutes to form luminescence layer 14. Transparent electrode layer 15, made of tin oxide, and transparent moisture protective layer 16, made of low melting lead glass, were painted to thickness of 0.2 ~ 0.5  $\mu$  and 40  $\mu$ , respectively. They were burnt on at 400 °C for 15 minutes. Brightness of EL device thus manufactured, shown in Fig. 2, was measured to be more than 10 Ft-L under 100 V and 60 Hz. Under voltage resistance test, it withstood adequately under voltage charge of 800 V. Ceramic substrate 11 and dielectric layer

13 were perfectly adhered to each other and there was no de-lamination recognized. Ceramic substrate 11 does not require high dielectric constant but it only requires mechanical strength and electrical insulating property. Therefore, in another test, when alumina ceramic green sheet of over 90 % purity was used as substrate, instead of dielectric layer 13, the same good results were obtained.

In example of EL device described above, thin green sheet of the same paste was laid over thick green sheet of paste mixture of ceramic powder and resin. They were bonded together under pressure, pre-heated to expel plasticizer resin, and sintered to make substrate 11 and dielectric layer 13 together. Dielectric layer on substrate does not have to be made using green sheet. Paste material can be painted directly on substrate. Both methods involve simple manufacturing process, and mass production efficiency is improved. Another method is to adhere together ceramic substrate onto thin ceramic dielectric layer.

Ceramic substrate is used for EL device of this invention, where substrate with electrode surface formed on top surface has dielectric layer of high dielectric constant ceramic, such as barium titanate, and luminescence layer, transparent layer and moisture protective layer also are formed, instead of metal substrate used in the past. Because ceramic substrate is used, there is no fear of de-lamination due to difference in thermal expansion coefficients, and no fear of impurity intrusion to degrade luminescence layer. Therefore, intermediate layer, between metal substrate and dielectric layer, which was necessary in EL device in the past, can be eliminated and there is no voltage drop. Since dielectric layer is made of ceramic material of high dielectric constant with easily expelled resin by pre-heating, it has higher dielectric constant than that uses a large amount of glass, which lowers dielectric constant. Brightness and voltage resistance are remarkably improved, as shown in the application example.

Figure 3 is a numerical figure display made according to this invention. More than one strip electrodes 22a ~ 22g are arranged in a shape of character '日' 22 on top surface. On bottom surface, more than one conductive wires are placed, or circuitry board 31, which is made of separate ceramic plate with more than one conductive wires 32a ~ 32g on top surface, is adhered to as shown in the figure. Stripe-shaped electrodes 22a ~ 22g on top surface and conductive wires 32a ~ 32g on bottom surface are selectively connected through conductive surfaces 21'a ~ 21'g of through holes 21a ~ 21g on ceramic. Other than this fact, EL device is manufactured in the same way as in example of Fig. 2. Charging electrical signal between conductive wires 32a ~ 32g of ceramic circuitry board, and transparent electrode layer 5 causes to display any number '0 ~ 9' in luminescence layer 4 via dielectric layer 3. Example of Fig. 3 showed one character '日' but in reality, it is desirable that more than one '日' character are formed.

According to this invention, not being limited to shape shown in Fig. 3, many dot-shape or stripe-shape electrode surfaces may be made on top surface of ceramic substrate. On the bottom surface of substrate, more than one conductive wires are arranged and connected via through holes to ceramic multi-layered circuitry boards. At the same time, not only numerical figure displays but many other shapes of characters, symbols and pictures can be displayed by connecting selectively electrode surface and conductive wires of multi-layered circuitry board.

#### 4. Brief Explanation of Figures

Figure 1 is cross section view of EL device of the past,  
Figure 2 is cross section view of EL device of this invention,  
Figure 3 is another example of EL device of this invention.

A is plan view,

B is front cross section view along Ⅰ-Ⅰ in Fig. A, and

C is back view.

Same numbers in figure 2 and 3 refer to same parts as in Fig. 1.

- 11 ... ceramic substrate
- 12 ... electrode surface
- 13 ... dielectric layer
- 14 ... luminescence layer
- 15 ... transparent electrode layer
- 16 ... moisture protective layer
- 17 ... alternate current power source
- 21 ... ceramic circuitry board
- 21a ~ 21 g ... through hole
- 22 ... numerical figure display section in '日' form
- 22a ~ 22g ... plural number of linear shapes electrode surface
- 32a ~ 32g ... plural number of conductive wire

#### 5. Additional Inventors

Takami, Akio, Aichi Prefecture

Yagi, Hideaki, Aichi Prefecture



ら従来の如く誘電率を低下するガラスを多量に含有したものに比し高い誘電率を呈し、上記実施例に示したように輝度、耐電圧を著しく向上する効果がある。

次に第3図は本発明に従つて成した数字表示素子を示し、上面に複数の線状電極22a~22gによつて「日」の字状に配列した数字表示部分22を形成し、かつ下面に複数の導線を直接形成するか、あるいは図示の如く上面に複数の導線22a~22gを形成した他のセラミツクからなる回路板31を一体に貼合すると共に上面の線状電極22a~22gと下面の導線22a~22gを各々選択的に接続する導電面21a~21gを施したスルーホール21a~21gを穿設したセラミツク基板を使用する以外は、上記第2図の実施例と同様に構成してなり上記セラミツク回路板の複数導線22a~22gのいずれか1ヶ所以上と透明電極層2との間に電気信号を印加することによつて前記導線と導通する電極に誘電体層2を介して接する発光体層4を「0~9」の数字に部分的に

発光表示するものである。尚この第3図の実施例は1個の「日」の字文字を示したが、実用に際しては複数の「日」の字文字を形成することが望ましい。

更に本発明に従えば上記第3図の形態に限らずセラミツク基板の上面に点又は線状の電極面を多数形成し、その基板の下面には複数の導線を見えこれらをスルーホールによつて所定回路に構成したセラミツク多層回路板を配設すると共に上記電極面と多層回路板の導線を同じくスルーホールによつて選択的に導通することによつて上記数字表示はもちろんのこと、文字、記号、図形等各種の形状を表現することもできる。

#### ※ 図面の簡単な説明

第1図は従来のEL素子を示す断面図、第2図は本発明のEL素子を示す断面図、第3図は本発明の他の実施例に係るEL素子を示し、Aは表面図、BはA図I-I線に沿う断面正面図、Cは裏面図である。尚第2、3図中同一符号は同一部品を示す。

11...セラミツク基板、12...電極面、  
13...誘電体層、14...発光体層、15...  
透明電極層、16...防護保護層、17...  
交流電源、21...セラミツク回路板、  
21a~21g...スルーホール、22...「日」  
の字状数字表示部分、22a~22g...複数の線  
状電極面、22a~22g...複数の導線

特許出願人 日本特殊陶業株式会社  
代表者 小川 修 次

